

# Laue 斑点の固有ひろがり

柴 田 昇・岩 永 浩

(昭和44年9月30日受理)

## A Method of Estimating the Proper Length of a Laue Spot

Noboru SHIBATA and Hiroshi IWANAGA

### Abstract

To determine precisely the crystal lattice tilting or twist from the radial length of a Laue spot taken by x-ray micro-beam technique, it is necessary to estimate the proper radial length of the corresponding Laue spot when the crystal is completely free from distortion. A method has been developed to estimate the proper length of the Laue spot, employing "effective area" of the specimen for x-ray diffraction. In this method, the specimen is considered to be composed of a set of parallel lattice planes. It is supposed that those planes exist in the effective area can diffract sufficient x-ray beam to blacken the photographic emulsion. An example of the application to an investigation of the Laue spots from a ZnO crystal taken by x-ray micro-beam technique is illustrated.

### I 緒 論

Laue 斑点の形状, ひろがり, は, Laue 斑点を与える試料結晶格子面の形, 大きさ, 傾き, ねじれ等の欠陥, X線源の大きさ, コリメーターと関連してのX線照射領域のひろがりやX線束の発散, フィルムの形状, 位置などによって決まる。Laue 斑点のひろがり, 形状から結晶格子面の回転, ねじれ等を推定するためには, 結晶が完全である場合の格子面の幾何学的条件, X線源のひろがり, コリメーターの大きさ, それらの相対的配置によるX線束の発散角, 試料のX線照射領域の結果として生じる Laue 斑点の固有ひろがり——幾何学的ひろがりを知っておく必要がある。微小焦点X線源を用いた場合, 結晶格子面の幾何学的条件は Laue 斑点上にかなり忠実に表われてくるので, Laue 斑点の固有ひろがりを無視することはできない。

Dragsdorf と Webb<sup>1)</sup> は  $\text{Al}_2\text{O}_3$  whisker 中の格子面のねじれを, 微小焦点X線源と円筒フィルムを用いた場合の赤道線上の Laue 斑点の傾きから求め, Lal と Peneva<sup>2)</sup> は同じ方法によってえられた Laue 斑点の形状から, 斑点を生じる格子面の法線方向のずれを求める

方法を展開し、Cd whisker 中の転位の研究に適用した。

我々は微小X線束法 (X-ray micro-beam 法) を用いて ZnO 単結晶の Laue 写真を取り、結晶の完全度と結晶成長の関連について研究を行っているが、Lal-Peneva の式に従って格子面の傾きを知る際に、*effective radius* なる量を導入して、Laue 斑点の固有ひろがりを実定する方法を考えたので、それについて報告する。

## II Laue 斑点のひろがり

### 1. 格子面の回転と Laue 斑点の半径方向のひろがり

平面フィルムを用いた場合の Laue 斑点の半径方向のひろがりを  $4y'$ 、格子面の回転角を  $\delta\varphi$  とすると、

$$4y' = \frac{2D_0}{\cos^2 2\theta} \delta\varphi \quad (1)$$

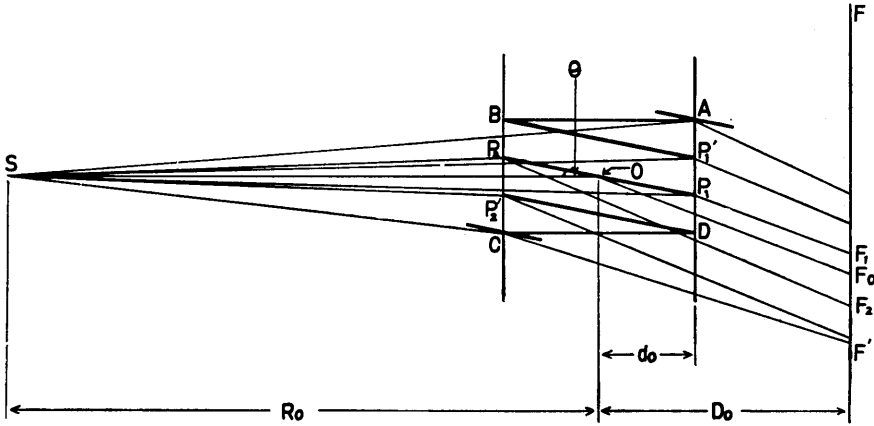
なる関係があり<sup>3)</sup>、この式が Laue 斑点のひろがりから、格子面の回転角を求めるのに用いられている。ここで  $\theta$  は Bragg 角、 $D_0$  は試料、フィルム間距離である。この式は、完全に平行なX線束が、大きさを無視できる結晶に入射し、格子面から Bragg の条件に従って鏡面反射をした場合、格子面の回転にともなう Laue 斑点のひろがりについて記述してあるのみである。換言すれば、X線の回折方向のみを問題にして、試料の形、大きさ、それにともなう回折にあずかる格子面の形状、入射X線束の発散角などが Laue 斑点に及ぼす影響を無視してある。

微小X線束法においては、X線照射領域がせまく、X線束の発散角も小さいので、Laue 斑点に対する格子面の形状、大きさの効果を無視することができ、(1)式が妥当するように思われる。しかしこの場合には Laue 斑点のひろがり自身が非常にせまくなり、照射領域がせまいと、その中での格子面の傾き、ねじれ等も小さくなるので、格子面の幾何学的形状、X線束の発散角等を無視して、Laue 斑点の形状から格子の傾き、ねじれ等を求めることは、分単位あるいはそれ以下の角変化を問題にするとときに適当でないことは明らかである。

Lal と Peneva<sup>2)</sup> は Laue 斑点を生じる試料結晶中の格子面の傾きによる格子面の法線のずれを Laue 斑点のひろがりから求める方法を展開している。しかしその計算の中では、試料の厚さによる Laue 斑点のひろがりも考慮されているが、入射X線に垂直な方向の試料のひろがりや、X線源のひろがりも Laue 斑点に及ぼす効果について充分考慮されているとは言いがたい。我々は格子面が完全で、吸収が無視できる場合の Laue 斑点の固有ひろがりを求めるため、X線照射領域のうち、実際にフィルム乳剤黒化に役立ち、Laue 斑点のひろがりを与えるものの目安として、*effective radius* なる量を導入する計算法を見出したので、以下これについてのべる。このような固有ひろがりも Lal と Peneva<sup>2)</sup> の式を用いて格子面の傾きを求める場合、Laue 斑点のひろがりを補正するものとして用いることができるであろう。

## 2. 格子面のひろがりの効果

第1図は厚さ  $2d_0$  の板状結晶試料に、試料面に垂直にX線が入射した場合の入射面の図である。試料のX線照射領域は、底面の半径  $r_0$ 、高さ  $2d_0$  の円筒で近似でき、第1図にはこの円筒の入射面による断面が ABCD で示してある。円筒の中心OにX線源の焦点内の一点Sからの入射X線SO ( $\overline{SO}=R_0$  とおく) が試料表面に垂直に入射するとする。この円筒状照射領域内のOを通る一つの格子面の入射面による断面を  $P_1P_2$  とする。Sを出たX線が点  $P_1$ , O,  $P_2$  においてこの格子面から回折され、入射X線に垂直に、Oから  $D_0$  だけ離なされた位置におかれた平面フィルム  $FF'$  上の  $F_1$ ,  $F_0$ ,  $F_2$  に達するとする。OS 方向に  $x$  軸、それと垂直に、フィルム面と平行に  $y$  軸をとり、 $F_1$ , O,  $F_2$  の  $y$  座標をそれぞれ  $y_1$ ,  $y_0$ ,  $y_2$  とする。



第1図：入射面におけるX線回折の geometry.

このような格子面  $P_1P_2$  に平行な格子面群によって生じる Laue 斑点のひろがりを考えるため、まず  $P_1P_2$  自身によるフィルム上の半径方向の斑点のひろがり  $4y_1=y_2-y_1$  を求めてみる。以下において Laue 斑点のひろがりという場合には、すべて半径方向のひろがりを意味することにする。SO なるX線が、O点において格子面  $P_1P_2$  から回折される場合の Bragg 角を  $\theta$  とすると、 $P_1$ ,  $P_2$  における Bragg 角はそれぞれ  $\theta-\delta\theta_1$ ,  $\theta+\delta\theta_1'$  とおける。ここで

$$\delta\theta_1 = -\frac{d_0 \tan \theta}{R_0 + d_0} \quad \delta\theta_1' = -\frac{d_0 \tan \theta}{R_0 - d_0}$$

であるが、実験条件では  $R_0 \gg d_0$  であるので

$$\delta\theta_1 = \delta\theta_1' = -\frac{d_0 \tan \theta}{R_0 + d_0} \quad (2)$$

なる値を用いてよい。従って、 $P_1$ ,  $P_2$  による回折線の  $y$  座標は

$$\left. \begin{aligned} y_2 &= (D_0 + d_0) \tan(2\theta + \delta\theta_1) - r_1 \\ y_1 &= (D_0 - d_0) \tan(2\theta - \delta\theta_1) + r_1 \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

たゞし

$$r_1 = d_0 \tan \theta \quad (4)$$

である。 $\tan$  の項を展開し、 $\delta\theta_1$  の二次以上の項を省略すると

$$4y_1 = 2d_0 \tan 2\theta - 2r_1 + 2D_0 \delta\theta_1 \sec^2 2\theta \quad (5)$$

となる。ここで第1項は明らかに試料の厚み  $2d_0$  から生じる Laue 斑点のひろがりを与える項、第3項は Bragg 角変化によるひろがりを与える項で、(1)式と似た形をしている。この場合、 $\theta$  の変化はX線を発散させる効果をもつことを示している。第2項の  $2r_1$  は入射X線に垂直な照射面積に対応するひろがりを与えるものと解釈されるが、この場合には  $P_1$  と  $P_2$  が SO に関して反対側にあるため、斑点のひろがりを打消す効果——例えば  $P_1$  が  $y$  軸の正側であれば、 $P_1$  が SO の延長上にある場合にくらべて、 $P_1$  による回折線は  $y_0$  に近づくことになる——があることを示している。このことから考えても、試料の入射X線に垂直な方向のひろがり（横方向のひろがり）の効果は(5)式の中に充分とり入れられているとはいえない。

### 3. 試料の横方向のひろがりの効果

2.でのべた試料の横方向のひろがりの効果をとり入れるため、試料の照射領域全体にわたって  $P_1P_2$  に平行な格子面が存在するとして、それらによる回折線のフィルム上の  $y$  座標のひろがりを考える。これらの回折線のうち、両極端の  $y$  座標を与えるのは、A点、C点に存在する  $P_1P_2$  に平行な格子面による回折線で、それらのフィルム上の  $y$  座標をそれぞれ  $y_A$ ,  $y_C$  とすると

$$\left. \begin{aligned} y_A &= (R_0 - d_0) \tan(2\theta + \delta\theta_2) - r_0 \\ y_C &= (R_0 + d_0) \tan(2\theta - \delta\theta_2) + r_0 \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

$$\delta\theta_2 = \frac{r_0}{R_0} \quad (7)$$

となるから、求める斑点のひろがり  $4y_2 = y_C - y_A$  は、(5)式の場合と同じ近似を用いて

$$4y_2 = 2d_0 \tan 2\theta + 2r_0 - 2D_0 \delta\theta_2 \sec^2 2\theta \quad (8)$$

となる。(5)式と同様、この式の第1項は試料の厚さの効果、 $2r_0$  は試料の横方向のひろがりによる効果を与え、第3項は Bragg 角の変化  $\delta\theta_2$  による効果であるが、この場合、 $\delta\theta_2$  の効果は(5)式の場合と異って、X線を収斂させる効果をもつ。

微小X線束法においては、入射X線は  $50 \mu$  程度のコリメーターを通るために強度が弱く、X線の照射領域も  $50 \sim 60 \mu$  程度であるので、写真撮影に100時間程度の露出が必要であることから考えて、第1図のA点、C点近くのせまい格子面からの反射強度はかなり弱く、フィルム乳剤の黒化に充分役立つか否か疑問である。従って、(8)式で与えられる Laue 斑点の固有ひろがりはいさ少し overestimate になっているおそれがある。この点を補正することは決して単純でないが、我々は以下のべるような取扱いを行った。

### 4. effective radius

第1図において  $P_1P_2$  に平行な格子面  $P_1'B$ ,  $P_2'D$  は格子面  $P_1P_2$  と同じ面積だけX線照射を受けるから、 $BP_2'DP_1'$  なる領域からの回折線はフィルム乳剤を黒化させるのに充分

な強度をもつと考えてよい。この領域中の  $P_1P_2$  に平行な格子面による回折線のフィルム上の固有ひろがり  $\Delta y_3$  は、点  $P_1'$  と  $P_2'$  における格子面からの回折線によってきまるから、 $P_1'$ 、 $P_2'$  からの回折線のフィルム上の  $y$  座標をそれぞれ  $y_1'$ 、 $y_2'$  とすると  $\Delta y_3 = y_2' - y_1'$  で

$$\Delta y_3 = 2d_0 \tan 2\theta + 2(r_0 - 2d_0 \tan \theta) - 2D_0 \delta \theta_3' \sec^2 2\theta \quad (9)$$

$$\delta \theta_3 = \frac{r_0 - 2d_0 \tan \theta}{R_0} \quad (10)$$

となる。(5)、(8)式と同様、この式の第1項は試料の厚さの効果を、第3項は Bragg 角変化の効果を表わしている。第2項は試料の横方向のひろがりの効果を表わす項で、これは(8)式の  $2r_0$  と(5)式の  $-2d_0 \tan \theta$  の2倍の和になっている。最大に見積った試料の横方向のひろがりの効果  $2r_0$  と(9)式の  $2(r_0 - 2d_0 \tan \theta)$  との差は、第1図で  $ABP_1'$ 、 $CDP_2'$  の領域からの回折X線に対応するものと考えられる。これらの領域内の格子面からの回折線のうち、どこまでのものが実際にフィルム乳剤黒化に充分の強度をもつかを決定することは、試料によるX線の吸収を考えなくても単純な問題ではない。しかしこの項は最大値が  $2r_0$  であること、格子面と入射X線とのなす角——Bragg 角  $\theta$ ——に依存することは確かである。従って、試料の横方向のひろがりによる効果を

$$2r_e = 2(r_0 - g d_0 \tan \theta) \quad (11)$$

とおくことができる。ただし  $g$  は  $0 \leq g \leq 2$  なる値をもち、 $g=0$  ならば試料の ABCD 領域からの回折線がすべて乳剤黒化に有効であるとした場合 ((8)式の場合)、 $g=2$  ならば試料の  $DP_1'BP_2'$  領域からの回折線のみが有効であるとした場合 ((9)式の場合) に対応する。 $g$  は  $\theta$  の関数と考えられ、試料、コリメーター、X線源等の実験条件によって変わるであろう。

$r_e$  は底面の半径  $r_0$  なる円筒状の照射領域の横方向のひろがりのうち、どれだけの部分が吸収も含めて写真乳剤黒化に有効であることを示す量であるといえることができるので、“*effective radius*” と呼び、 $r_e$  を半径とする円を“*effective area*” と呼ぶことにする。 $r_e$  または  $g$  は、実験によって求める外ないが、その場合には、照射領域における結晶の完全度が充分よい試料を用いなければならない。

#### 4. X線源のひろがりの効果

今までのべてきた Laue 斑点の半径方向の固有ひろがりは、X線源の焦点上の一点から出たX線によるものである。X線の実効焦点の大きさが、S を中心とする半径  $x_0$  の円であるとすると、格子面上の一点に入るX線の発散角  $\Delta \theta$  は、試料の照射領域のすべての点について近似的に

$$\Delta \theta = \frac{2x_0}{R_0} \quad (12)$$

で与えられるとしてよい。このX線の発散角  $\Delta \theta$  のため、S から出たX線が格子面上の任意の点で回折されてフィルム上に生じる Laue 斑点 のまわりに

$$\Delta y_4 = \Delta \theta D_0 \sec^2 2\theta \quad (13)$$

だけのひろがりをもつことになる。

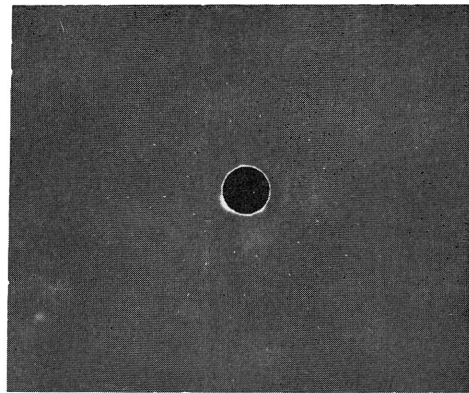
以上のことから、厚さ  $2d_0$  の完全度のよい試料の表面に垂直に半径  $r_0$  なる円形領域に、X線が照射された場合の Laue 斑点の固有ひろがり  $\Delta y$  は

$$\Delta y = 2d_0 \tan 2\theta + 2(r_0 - gd_0 \tan \theta) - (2\delta\theta_3 - \Delta \theta) D_0 \sec^2 2\theta \quad (14)$$

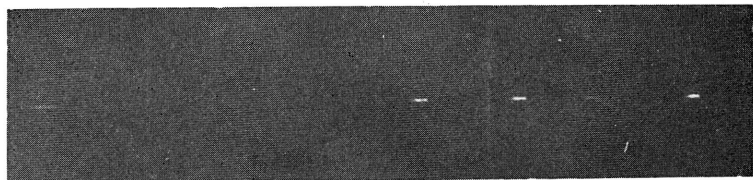
で与えられる。

### Ⅲ 一つの適用例

我々は ZnO 結晶成長機構研究のため、ZnO 結晶を X線的に研究している<sup>4)</sup>。第2図(a)は ZnO 結晶の成長初期に見られる rod 状結晶の微小 X線束法による Laue 写真である。この rod の大きさは、長さ0.5 mm、巾0.2 mm、厚さ0.15 mm程度である。rod は  $[2\bar{1}10]$  方向にのび、側面は (0001) と (0110) とによってとりかこまれていて Laue 写真は (0001) 面に垂直に X線を入射させたものである。撮影条件は第1図で  $D_0=21$  mm,  $R_0=165$  mm,  $2d_0=0.15$  mm,  $2r_0=0.06$  mm,  $2x_0=0.05$  mmである。第2図(b)は、Laue 写真の  $[\bar{1}210]$  zone に属する (2021), (3032), (4043), (1011) 斑点の部分に5倍に拡大したものである。フィルムは表裏二重に乳剤が塗布してあるので、写真では斑点がかなり長く見えるが、裏面の乳剤をけずり落した後に観測される斑点のひろがり  $\Delta Y$  は第1表に示した通りである。表には(14)式を用いた固有ひろがり、それらから求めた格子面の回転角を示してある。この表からみて、結晶の完全度がよい場合には斑点の固有ひろがりが重要な意味をもち、*effective radius* を充分考慮しなければならないことがわかる。ただ high angle の Laue 斑点のひろがりがありすぎないのは、写真の露出が充分でないというおそれや(この写真は Cu 対陰極, 50 kv 0.3 mA の条件で100時間露出してある), X線の吸収が考慮されていないこと、厚さの効果に対する補正がなされていないことと関係がないとはいえない。これらのうち、*effective radius* の中にくみこみうるものについては、実験的に  $g$  あるいは  $r_e$  を決



(a)



(b)

第2図(a): 微小X線法による ZnO 結晶からの Laue 写真.

(b): (a)の  $[\bar{1}210]$  zone の拡大.

定すればよいが，そのような形で補正できない項については別に考慮しなければならないことは当然である。

第1表 Laue 斑点の  $\Delta y$  とひろがりの実測値  $\Delta Y$

((10 $\bar{1}$ 1)斑点の測定値は斑点がうすいため正確でない)

hkl	$\Delta y(\text{mm})$		$\Delta Y(\text{mm})$	$\delta\varphi$
	$g=0$	$g=2$		
20 $\bar{2}$ 1	0.14	0.08	0.16	$1.2' < \delta\varphi < 4.9'$
30 $\bar{3}$ 2	0.18	0.10	0.16	$2.9' < \delta\varphi$
40 $\bar{4}$ 3	0.20	0.11	0.18	$2.9' < \delta\varphi$
10 $\bar{1}$ 1	0.28	0.19	(0.30)	( $0.5' < \delta\varphi < 2.7'$ )

### References

- 1) R. D. Dragsdorf and W. W. Webb : J. appl. Phys. **29** (1958) 817.
- 2) K. Lal and S. K. Peneva : J. appl. Phys. **39** (1968) 5474.
- 3) A. Taylor : *X-ray Metallography*, (John Wiley and Sons, 1961) P. 757.
- 4) 岩永 浩，柴田 昇：長崎大学教養部紀要，自然科学9 (1969) 29.